

0034362
MAR 1979 }

Best Available Copy

| | | | | |
|--|---------|-------------------------------|------------------------|-----------|
| 32160B/17 | A26 G03 | SHIE 24.08.77 *J5 4034-362 | A(6-AB, 8-D1) G(3-B1). | 228 |
| SHINETSU CHEM IND KK | | | | |
| 24.08.77-JA-100643 (13.03.79)-C08I-83/04 C09j-03/16 | | | | |
| Curable organo:polysiloxane compsn. - contains di:organo:polysiloxane, organo:hydrogen:polysiloxane, alkoxy:silane and platinum (cpd) catalyst | | | | |
| The compsn. comprises (1) 100 wt. pts. of diorganopoly- siloxane of formula | | | | |
| $\text{CH}_2 = \text{CH} - \text{SiO} \left(\text{SiO} \right)_n \text{Si} - \text{CH} = \text{CH}_2$ (where R is monovalent satd. hydrocar- bon residue, and n is integer), (2) | | | | |
| 0-100 wt. pts. of organopolysiloxane having $(\text{CH}_2 = \text{CH})(\text{R})_2\text{SiO}_{0.5}$ unit, $\text{R}_2\text{SiO}_{0.5}$ unit and SiO_2 unit, (3) organohydrogen polysiloxane having ≥ 3 H atoms per mole- cule, (4) 0.1-5 wt. pts. of alkoxy silane contg. unsatd. radical, (5) 0-500 wt. pts. of filler, and (6) catalytic amt. of Pt (cpd.). | | | | |
| The compsn. can easily be cured under mild heating in short period, and upon curing strong adhesive force to the substrate can be attained. The Pt cpd. includes Pt black, Pt acid chloride, etc. The amt. of the Pt (cpd.) used is 0.1-50 ppm, in terms of Pt. (7pp22) | | | | |
| | | | | J54034362 |

⑩日本国特許庁
公開特許公報

⑪特許出願公開
昭54-34362

⑩Int. Cl.²
C 08 L 83/04
C 09 J 3/16

識別記号

⑩日本分類
25(1) D 81
24(5) B 528

庁内整理番号
6779-4J
6613-4J

⑩公開 昭和54年(1979)3月13日
発明の数 1
審査請求 未請求

(全 7 頁)

⑩硬化性オルガノポリシロキサン組成物

⑩発明者 田中正喜

安中市磯部3-11-20

⑩特許 昭52-100643

⑩出願人 信越化学工業株式会社

⑩出願 昭52(1977)8月24日

東京都千代田区大手町2丁目6

⑩発明者 今井聖

番1号

安中市磯部3-19-1

⑩代理人 弁理士 山本亮一

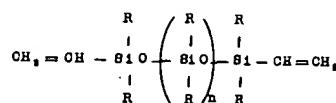
明細書

1. 発明の名称

硬化性オルガノポリシロキサン組成物

2. 発明の範囲

1. (1) 一般式



(式中のRは脂肪族不飽和結合を有しない置換もしくは非置換の一価炭化水素基、nは正の整数を示す)で表されるジオルガノポリシロキサン100重量部。

(2) (OH₂=OH)(R)₂SiO_{2.5}単位とR₂SiO_{2.5}単位とSiO₂単位とからなり、SiO₂単位に対する(OH₂=OH)(R)₂SiO_{2.5}単位とR₂SiO_{2.5}単位との和のモル比が0.5

~2.0で、かつ、ビニル基含有量が0.5~3

重量%であるオルガノポリシロキサン(式中のRは脂肪族不飽和結合を有しない置換もしくは非置換の一価炭化水素基を示す)0~100重量部。

(1) 和記(1)および(2)成分中のビニル基1個あたり、けい素原子に直結した水素原子を0.7~5個与えるに充分な量の、1分子中に該水素原子を3個以上有するオルガノハイドロジエンポリシロキサン。

(2) 不飽和基含有アルコキシラン0.1~5重量部。

例 充てん剤0~500重量部、および

(3) 粒度の白金もしくは白金化合物、からなる硬化性オルガノポリシロキサン組成物。

2. 和記不飽和基含有アルコキシランが、一式

(式中の R¹ は脂肪族二重結合を含む有機基、 R² はアルキル基もしくはアリール基、 R³ はアルキル基またはアルコキシ基直換アルキル基、 a は 0, 1 または 2 の数である) で示されるシラン化合物である特許請求の範囲第 1 項記載の組成物。

3. 発明の詳細な説明

本発明は硬化性オルガノポリシロキサン組成物、等には比較的おだやかに加熱により容易に硬化させることができ、かつ、硬化時各種の材質に対し強固に接着固化するオルガノポリシロキサン組成物に関する。

従来、けい素原子に結合した不饱和基（主としてビニル基）とけい素原子に直結した水素原子との間のいわゆる付加反応を利用した硬化性オルガ

特開昭54-31362 (2)
ノポリシロキサン組成物は公知である。このものは加熱により短時間で硬化させることができ、したがつて連続作業的応用が可能であり、また、硬化時副生成物の発生がないほか吸収が小さく、得られる硬化物は耐熱性、電気特性などにすぐれているので多方面に応用されている。

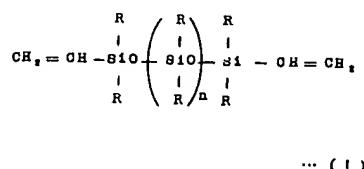
しかしながら、従来公知のこの種のオルガノポリシロキサン組成物は、硬化する際そのへ触している被着体との接着性に欠けているという性質を有している。これは型取り母型用などとしての応用には望ましい性質とされるが、注型、苦性などによる電気絶縁材料としての応用には致命的欠点とされる。

この被着体との接着性を向上させるには、一般に被着体表面をあらかじめプライマー処理するという方法が広く採用されているが、このプライマー処理の方法には、このプライマー自身が有機溶剤であるため、安全衛生上の問題点があるほ

か、このプライマー処理の工程が必要とされることはそれだけコストの上昇をもたらす。他方また、対象物の形状材質によつては適用不可能な場合もあるという種々の欠点がある。

本発明は、上記したようなプライマーを使用する必要が全くなく、組成物それ自体が硬化時、被着体に接着固化する性能を備えたいわゆる自己接着性のシリコーンゴム組成物を提供しようとするもので、これは

(1) 一般式



(式中の R は脂肪族不饱和結合を有しない置換もしくは非置換の一価炭化水素基、 R^a は正の整数を示す) で表されるジオルガノポリシロキサン

100 電量部、

(4) (OH₂ = OH) (R)_aSiO_{2-a} 単位と R_aSiO_{2-a} 単位と SiO₂ 単位とからなり、 SiO₂ 単位に対する (CH₂ = CH) (R)_aSiO_{2-a} 単位と R_aSiO_{2-a} 単位との和のモル比が 0.5 ~ 2.0 で、かつビニル基含有量が 0.5 ~ 3 電量部であるオルガノポリシロキサン（式中の R は脂肪族不饱和結合を有しない置換もしくは非置換の一価炭化水素基を示す） 0 ~ 100 電量部、

(1) 前記(1)および(2)成分中のビニル基 1 個あたり、けい素原子に直結した水素原子を 0.7 ~ 5 個与えるに充分な量の、1 分子中に炭水素原子を 3 個以上有するオルガノハイドロジエンポリシロキサン、

(2) 不饱和基含有アルコキシシラン 0.1 ~ 5 電量部、

附 充てん剤 0 ~ 500 電量部、および

(3) 銀線の白金もしくは白金化合物、

からなる硬化性オルガノポリシロキサン組成物に

するも
以下本
本発明
ポリシロ
ものであ
ない理説
これには
アルキル
ル基、シ
のシク・
皮膜原子
ゲン原子
される。
ル基で、
る（メ
また、ジ
ジオル
~ 1,0

ること
シロキ
R_aSi
の和と
1でそ
中のヒ
ウなモ
(付の
の効率
成るこ
けい素
ロギン
(付の
発明に
する。
とさ
81-
の分

回するものである。

以下本発明を詳細に説明する。

本発明に使用される(I)成分としてのジオルガノポリシロキサンは、前記一般式(1)で示されるものであり、式中のRは脂肪族不饱和結合を有しない変換もしくは非変換の一価炭化水素基を表し、これにはメチル基、エチル基、プロピル基などのアルキル基、フェニル基、トリル基などのアリール基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基などのシクロアルキル基、およびそれら炭化水素基の炭素原子に結合している水素原子が部分的にヘドゲン原子、シアノ基などで置換した基などが例示される。このRで示される基は特にすべてメチル基であるかまたはメチル基とフェニル基からなる(メチル基が70モル%以上)ことが好ましい。また、式中のnは正の整数を示すが、これはこのジオルガノポリシロキサンが25℃において50～1,000,000センチストークス、特に

特許(54-343621)100～100,000センチストークスの粘度を示すような値であることが望ましい。

何成分は、必ずしも必須とされる成分ではないが、これを使用した場合には組成物の流動性の向上および硬化物の機械的強度の向上がもたらされる。なお、この(I)成分自身は従来公知のものであり、これはたとえばRで示される一価炭化水素基がメチル基である場合であれば(1) $(CH_3=CH)$ (R) $_{1-3} 10_{4-6}$ 単位原としての $(OH_2=OH)(OH_2)$ $_{810-81}(OH_2)_2$ $(CH_2=CH)$ または $(OH_2=OH)$ $(OH_2)_2$ $_{810-81}$ (b) R $_{1-3} 10_{4-6}$ 単位原としての $(CH_2)_2$ $_{810-81}(OH_2)_2$ または $(CH_2)_2 810_{4-6}$ (c) 810_{4-6} 単位原としてのけい酸ナトリウム、アルキルシリケート、ポリアルキルシリケートまたは四塩化けい素などを適当に組合せ、成の存在下に共加水分解結合させることによりこれら3種のシロキサン単位からなる共重合体として得られる。

上記(b)、(c)および(d)成分の使用比率を変化させ

ることによって種々の性状の共重合オルガノポリシロキサンが得られるが、不透明においては、R $_{1-3} 10_{4-6}$ 単位と $(OH_2=OH)$ (R) $_{1-3} 10_{4-6}$ 単位の和と 810_{4-6} 単位とのモル比が0.5:1～2.0:1であり、かつ、共重合オルガノポリシロキサン中のビニル基含有量が0.5～3.0質量%であるようものが望ましい。

(I)成分を使用して前記した機械的強度の向上等の効果を期待するためには、これを(I)成分100質量部あたり10～50質量部配合するとよい。 (I)成分としてジオルガノハイドロジエンポリシロキサンは、後記する白色粗末の存在下に、前記(I)成分、(II)成分中のビニル基と付加反応してこの発明の組成物を硬化させ、実用上充分な強度を有するシリコーン硬化物を与えるための不可欠成分とされるものである。このものは1分子中に $81-8$ 結合を3個以上有するものであれば、その分子構造特に制限はなく、従来製造されてい

るたとえば線状構造、環状構造、分枝線状構造の各構造のものが使用される。これらのものににおいてけい素原子に結合している有機基は一般にはメチル基であるが、これは主としてメチル基からなり部分的にフェニル基、メチル基以外のアルキル基などであつてもよい。

(I)成分の使用量は、これが架橋剤として前記した付加反応により組成物を硬化させる作用を示すことが要求されるため、(I)成分および(II)成分中のビニル基1個あたり、けい素原子に直結した水素原子0.7～5個好ましくは1～2.5個を与えるに充分な量とすることが必要とされる。

つぎに、(II)成分としての不饱和基含有アルコキシランは、この添加によって本発明の目的である自己接着性の効果がもたらされるものであり、きわめて重要な成分である。これはたとえば一般式



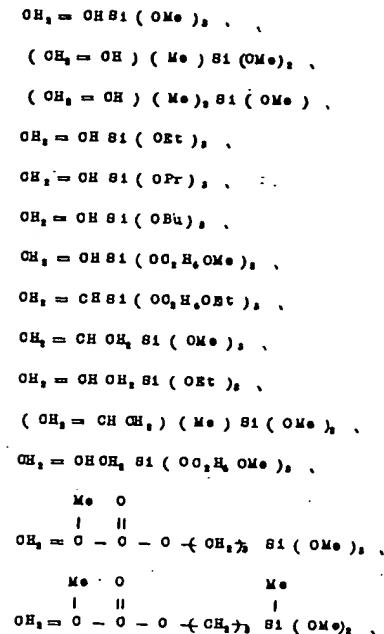
(式中の R¹ は脂肪族二重結合を含む有環基、R² はアルキル基もしくはアリール基、R³ はアルキル基またはアルコキシ基置換アルキル基、n は 0、1 または 2 の数である) で示されるシラン化合物であつて、R¹ で示される脂肪族二重結合を含む有環基としてはビニル基、アリル基などのアルケニル基、3-メタクリロキシプロピル基などが、R² で示されるアルキル基もしくはアリール基としてはメチル基、エチル基、プロピル基などのアルキル基、フェニル基などのアリール基が、R³ で示されるアルキル基またはアルコキシ基置換アルキル基としてはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基などのアルキル基、2-メトキシエチル基、2-エトキシエチル基などのアルコキシ基置換アルキル基が例示される。

このような不飽和芳香族アルコキシランとしてはつぎのようなものが例示される。ただし、以下の記載においてM₁はメチル基、M₂はエチル

これらの自己接着性付与成分としての付成分は、前記付成分 100 重量部に対して 0.1 ~ 5 重量部ほどましくは 0.5 ~ 3 重量部添加する必要があり、これが少なすぎると自己接着性の性能を得ることができず、逆にこれが多すぎると、硬化物の物理的なとえば吸湿的強度が劣るようになる。

併せ配合としての充てん剤は、必要に応じ加えられる成分であるが、これを配合した場合には硬化物が機械的強度、熱伝導性、難燃性にすぐれん製品となる。このような目的で配合される充てん剤としては、ヒュームシリカ、沈でんシリカ、アルミニウムシリケート、石英粉末、滑石英粉末、けいそう土、炭酸カルシウム、二酸化チタン、カーボンブラックなどが例示される。もちろん、これらにはさらに酸化鉄、液化亜鉛、炭酸マグネシウムなどを配合することは差支えない。なお、これら充てん剤の配合量はこれが多量になると、組成物の流動性が悪くなるほか、硬化物が硬くてもろ

基、Pr はプロピル基、Bu プチル基をそれぞれ表す。



いものとなるので、これは(1)成分 100 質量部あたり 500 質量部までとすべきである。

〔1〕成分としての白金もしくは白金化合物は、〔1〕
および〔2〕成分と〔3〕成分との付加反応を進行させる
ための触媒として使用されるものであり、これに
は白金プラチナ、塩化白金酸、塩化白金酸とオレ
フィンもしくはアルデヒドとのコンプレックス、
あるいは塩化白金酸のアルコール変性物が例示さ
れる。なお、これらの成分の使用量は所定の硬化
速度に応じて適宜増減されるが〔1〕成分の使用量に
対して Pt 量でおおむね 0.1~50 ppm 程度と
すればよい。

以上述べた成分のほかに、低モジュラス化、低粘度化を目的として比較的低分子量のシリコーンオイルを添加すること、さらには耐候性向上剤、難燃化剤、反応剤側剤などを必要に応じ加えることは想定される。

本発明による硬化性オルガノポリシロキサン組

成物は、以上
により得られ
るににより比を
から、ペア
したがつて、
在型、含浸
される。こ
風のひだや
硬化の際各
いう等微を
止剤、ブラン
ジモールド
プリント回
な噴霧板の
品の防爆、
用接着剤か
ルト類にD
つぎに、

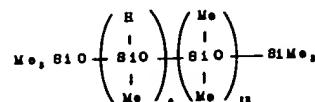
〔判定基準〕

| | |
|---|----|
| 1 | 女 |
| 2 | CH |
| 3 | CH |
| 4 | OB |
| 5 | OE |
| 6 | (|
| 7 | C |
| 8 | M |

实施例

実施例 1.

25℃における粘度が1,000センチストークスであり、分子量末端がビニルジメチルシリル基で封鎖されたジメチルポリシロキサン100重量部、分子式



で示されるメチルハイドロジエンポリシロキサン5重量部および塩化白金酸の5% (Ptとして) イソブロピルアルコール溶液0.1重量部からなるベース組成物に、下記に示す添加剤をいずれの場合にも1.0重量部添加し、それを2枚のガラス板の間にはさんで加熱硬化 (100℃/120分、または120℃/60分) させ、接着固化したかどうかを調べたところ、添加剤の種類に応じそれぞれ下記に示すおりの結果が得られた。ただし、実験番号1および8は比較例を示したものである。

つぎに、本発明の実施例をあげる。

〔判定基準〕

- ：強固に接着固化
- △：接着固化するが接着力がやや弱い
- ×：接着固化せず

| 実験番号 | 添加剤 | 100℃ | | 120℃ | |
|--|-----|------|-----|------|-----|
| | | 120分 | 60分 | 120分 | 60分 |
| 1 なし | | × | × | | |
| 2 $\text{CH}_2=\text{CH Si}(\text{OMe})_2$ | ○ | ○ | | | |
| 3 $\text{CH}_2=\text{OH Si}(\text{OEt})_2$ | △ | ○ | | | |
| 4 $\text{CH}_2=\text{OH Si}(\text{OO}_2\text{H}_2\text{OMe})_2$ | ○ | ○ | | | |
| 5 $\text{CH}_2=\text{OH OH}_2\text{Si}(\text{OMe})_2$ | ○ | ○ | | | |
| 6 $(\text{CH}_2=\text{OH})(\text{Me})\text{Si}(\text{OMe})_2$ | △ | ○ | | | |
| 7 $\text{Me} \begin{array}{c} \text{O} \\ \\ \text{H} \\ \\ \text{O} \end{array} - \text{CH}_2-\text{Si}(\text{OMe})_2$ | ○ | ○ | | | |
| 8 $\text{Me Si}(\text{OMe})_2$ | | × | × | | |

実施例 2.

実施例1におけるベース組成物に、添加剤とし

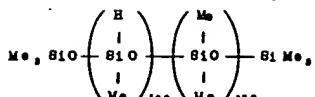
て $\text{CH}_2=\text{CH Si}(\text{OMe})_2$ を種々の量で添加したもののについて、実施例1と同様にして100℃/120分、または120℃/60分で加熱硬化させて接着固化したかどうかを調べたところ、添加量に応じそれぞれ下記に示すおりの結果が得られた。

| 実験番号 | 添加量 (重量部) | 100℃ | | 120℃ | |
|--------|--------------|------|-----|------|-----|
| | | 120分 | 60分 | 120分 | 60分 |
| 9 | 0.1 | △ | △ | △ | △ |
| 10 | 0.5 | ○ | ○ | ○ | ○ |
| 2 (再掲) | 1.0 | ○ | ○ | ○ | ○ |
| 11 | 3.0 | ○ | ○ | ○ | ○ |
| 12 | 5.0 | ○ | ○ | ○ | ○ |

実施例 3.

25℃における粘度が600センチストークスであり、分子量末端がビニルジメチルシリル基で封鎖されたジメチルポリシロキサン100重量

部、分子式



で示されるメチルハイドロジエンポリシロキサン 8 重量部、平均粒子径 5 μ m の石英粉末 100 重量部、実施例 1 中の実験 No. 7 で使用したと同様の添加剤 2 重量部、および塩化白金膜の 5 ダイソブロピルアルコール溶液 0.1 重量部からなる組成物を調製し、これを下記の各種の材質の面に付着させ、100°C で 2 時間加熱して接着固化したかどうか調べたところ、それぞれ下記に示すとおりの結果であった。

特開昭54-34362 (6)

| 実験番号 | 材質の種類 | 結果 |
|------|---------|----|
| 1.3 | ガラス | ○ |
| 1.4 | アルミニウム | ○ |
| 1.5 | 鉄鋼 | ○ |
| 1.6 | ステンレス | ○ |
| 1.7 | エポキシ樹脂 | ○ |
| 1.8 | フェノール樹脂 | ○ |

実施例 4.

25°C における粘度が 5,000 センチストーラスであり、分子量 2,000 のビニルジメチルシリル基で封鎖されたジメチルポリシロキサン 90 重量部、 $(\text{Me}_2\text{SiO})_9\text{SiO}_{0.1}$ 単位と $\text{Me}_3\text{SiO}_{0.1}$ 单位と $\text{SiO}_{0.1}$ 単位とからなる共重合体 ($\text{SiO}_{0.1}$ 単位に対する $(\text{Me}_2\text{SiO})_9\text{SiO}_{0.1}$ 単位と $\text{Me}_3\text{SiO}_{0.1}$ 単位との和のモル比が 1.0 であり、ビニル基含有量 1.0 重量%) 10 重量部、実施例 1 で使用したと同様のメチルハイドロジエンポリシ

5. 確正の対象
明細書
6. 確正の内容
1) 明細書第 1 9
し、これを……
り補正する。
「を削製した。
時間加熱し確
張り強さ 3.5
裂き強さ 6.0
なお、これ
せ、100°C
したところ、
が得られた。
2) 第 20 ページ
補正する。
「実験

1.3

ロキサン 5 重量部、比表面積 200 m^2/g のトリメチルクロロシラン処理フュームシリカ 20 重量部、塩化白金膜の 5 ダイソブロピルアルコール溶液 0.1 重量部、および $\text{CH}_2=\text{OH} \text{ Si}(\text{OH})_3$ 2 重量部からなる組成物を削製した。これについて実施例 3 の実験 No. 1 3 ~ 1 8 と同様にして各種の材質に対する接着性を調べたところ、いずれの場合も牢固に接着固化した。

手続補正書(自免)

昭和 58 年 11 月 13 日

特許庁長官 熊谷善二 殿

1. 事件の表示

昭和 52 年特許第 100643 号

2. 免明の名称

硬化性オルガノポリシロキサン組成物

3. 確正をする者

事件との関係 特許出願人

名称 (206) 信越化学工業株式会社

代理人 山本亮一

4. 代理人

住所 〒100-8591 東京都中央区日本橋本町 4 丁目 1 号 水井ビル

(電話番号 (03) 3558-0859)

氏名 (206) 山本亮一



5. 検査の対象

明細書

6. 検査の内容

1) 明細書第 19 ページ下第 4 行～末行の「を固定し、これを……の結果であつた。」を下記のとおり補正する。

「を固定した。このものについて、100℃で 2 時間加熱し硬化させ、物性を測定したところ引張り強さ 3.5 kg/cm^2 、伸び率 150% および引裂き強さ 6.0 kg/cm であつた。

なお、これを下記の各種の材質の面に付着させ、100℃で 2 時間加熱して剪断強さを測定したところ、それぞれ下記に示すとおりの結果が得られた。」

2) 第 20 ページ第 1 行～第 7 行を下記のとおりに補正する。

| 実験番号 | 材質の種類 | 剪断強さ (kg/cm^2) |
|------|-------|---------------------------|
| 13 | ガラス | 11.0 |

| | | |
|----|---------|------|
| 14 | アルミニウム | 11.2 |
| 15 | ガラス | 9.5 |
| 16 | ステンレス | 7.0 |
| 17 | エポキシ樹脂 | 10.8 |
| 18 | フェノール樹脂 | 11.5 |

3) 第 21 ページ第 5 行～第 8 行の「これについて実……接着固化した。」を下記のとおり補正する。

「このものについて 100℃で 2 時間加熱し硬化させ、物性を測定したところ、引張り強さ 4.5 kg/cm^2 、伸び率 300%、引裂き強さ 1.8 kg/cm であつた。」

なお、これを下記の各種の材質の面に付着させ、100℃で 2 時間加熱して剪断強さを測定したところ、それぞれ下記に示すとおりの結果が得られた。

| 実験番号 | 材質の種類 | 剪断強さ (kg/cm^2) |
|------|--------|---------------------------|
| 19 | ガラス | 23.0 |
| 20 | アルミニウム | 18.5 |

トータル

シリアル

10 重量

810.0

10.0 単

単位と

り、ビ

実施例 1

ノボリシ

(自発)

3 年 11 月 11 日

提出

出成物

株式会社

日本石油 水井ビル

3-1-1

4

| | | |
|----|---------|------|
| 21 | 軟 剥 | 19.2 |
| 22 | ステンレス | 17.8 |
| 23 | エポキシ樹脂 | 21.5 |
| 24 | フェノール樹脂 | 21.0 |

に付着させ、120℃で 2 時間加熱して接着性を調べたところ、いずれの場合も強固に接着固化した。」

以上

4) 同ページ末行の次に実施例 5 を追加する。

「実施例 5

25℃における粘度が 8,000 センチストークスであり、分子鎖末端がビニルジメチル基で封鎖されたジメチルポリシロキサン 90% 部、実施例 4 で使用したと同様の $(\text{Me}_2)_2(\text{CH}_2=\text{CH})\text{SiO}_{0.8}$ 単位と $\text{Me}_2\text{SiO}_{0.8}$ 単位と SiO_2 単位とからなる共重合体 25% 部、平均粒子径が 5 μm の白金板の 5% イソプロピルアルコール溶液 0.1 ml 量出、 μm の石英粉末 5.0 ml 部、 $\text{Me}_2\text{HSiO}_{0.8}$ 単位と SiO_2 単位とからなる重合体 $[\text{Me}_2\text{HSiO}_{0.8}]$ 単位と SiO_2 単位とのモル比が 2:1 である] 6 μm 部および 3-メタクリルオキシトリメトキシラン 2 μm 部からなる組成物を點製した。これをガラス、アルミニウム、エポキシ樹脂の面

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

BLACK BORDERS

IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

FADED TEXT OR DRAWING

BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING

SKEWED/SLANTED IMAGES

COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

GRAY SCALE DOCUMENTS

LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.